

レーザーコンプトン γ 線による対生成陽電子を利用した 物質評価への応用

大阪府立大学工学研究科 堀史説

はじめに

物質の特性は主に物質を構成している原子の種類（元素）とそれらの配置（構造）によって決まっているが、同じ元素で構成された同じ構造体でも内部に存在する様々な欠陥によっても硬さなどの機械的性質、電気伝導や磁性などの物理的性質、耐食性などの化学的性質といった様々な性質変化に影響する。その欠陥も多種多様で、それらの欠陥状態に起因して特性も変化する。そのため、物質研究において欠陥の検出、欠陥構造などの同定は非常に重要である。また、近年の物質研究においてはミクロン以下の薄膜やナノ構造体といった非常に小さな物質を扱うことが多く、そのような小さな構造体になると構成する全原子数に対する欠陥数の割合が極端に増加するため、欠陥が物質特性に大きく寄与することになる。一般に欠陥評価には電子やX線が主に用いられている。しかし、これらの手法では主に格子間原子や欠陥集合体の検出は可能ではあるが、原子空孔などの微小で微量な空隙型の欠陥を検出するのは困難である。これに対し 1960 年代に発見され、その後物質評価に用いられるようになった陽電子は、主に空孔型の空隙に局在し消滅するため、空孔型欠陥の検出に用いられてきた。また陽電子は物質への入射後に物質を構成している原子の原子核と強いクーロン相互作用を受け、自ら拡散して空隙位置に局在する自己探索性という特徴を有している。このような特性から、特に半導体や金属中の微小微量の原子空孔の検出、また近年では高分子材料の自由体積のサイズ評価にも適用されている。しかし、装置および解析の特殊性などにより一般的な市販品の装置もほとんど無く、電子顕微鏡などのように簡単に特定エネルギーの線源が得られないことから研究でもあまり汎用性のある実験手法ではない。しかし本稿では、放射光施設などにおいて容易に線源を発生し、単純なシステムで高エネルギー陽電子での物質中の欠陥検出が可能となりうる手法についての最近の研究状況を紹介する。

陽電子消滅法

静止陽電子は電子と対消滅し主に 2 光子消滅するが、この過程において図 1 のようにエネルギー保存 $E=mc^2$ により電子と陽電子の質量の和が $h\nu=511\text{keV}$ の 2 つの光 (γ 線) となり放出される。物質中に注入された陽電子が対消滅までに要する時間は、拡散に要する時間が無視できるほど短いため、熱化した陽電子が拡散できずに局在化した位置での電子と陽電子の波動関数の積の空間積分に反比例する。そのため空隙のサイズが評価できる。一方、消滅時に放出される γ 線エネルギーについて、消滅対となる物質中の電子は原子核周囲の軌道電子であるため運動量 α を有している。そのため観測される光は運動量保存則により $511 \pm \alpha \text{ keV}$ というドップラーシフトを生じる。この α が大きいほど内殻側の電子と、 α が 0 に近づくと外殻の自由電子などとの消滅を示す[1]。したがって図 2 に示すように物質中の空隙で陽電子が消滅する場合、電子密度

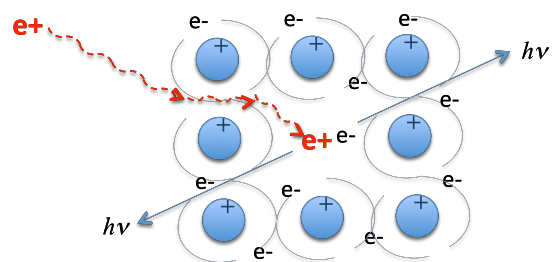


図1 結晶中での陽電子拡散と2光子消滅の模式図

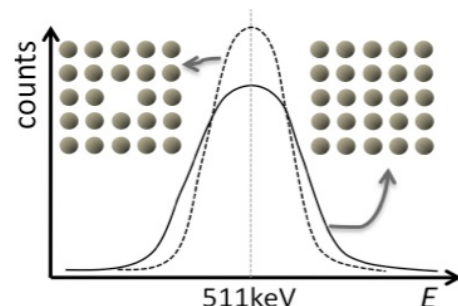


図2 欠陥の有無による陽電子消滅 γ 線のエネルギー分布の違い

が周囲に比べ希薄なため光のエネルギーは 511keV に先鋭化し、欠陥が無い場合は 511keV から広い分布の幅をもったスペクトルとして得られる。このエネルギースペクトルの分布を解析することによって空隙周囲に配置している元素を特定することも可能である。

陽電子消滅測定のための陽電子源

陽電子消滅測定の実験には陽電子線源が必要であるが、主に β^+ 崩壊する放射性同位元素(RI)を用いる方法と対生成で陽電子を作り出す方法がある。一般的には RI 結晶を金属箔やカプトン箔などの高分子膜に密封して使用方法が最も多く行われている。この方法では RI を測定対象物に密着させるため同一試料で線源をサンドイッチする必要がある。さらに放出される陽電子のエネルギーは元素によって一意的かつ広いエネルギースペクトルを有する。最も良く用いられる ^{22}Na は放出陽電子の最大エネルギーは 0.546 MeV である。これを金属に入射した場合、

最大侵入深さおよそ $100\ \mu\text{m}$ で、得られる情報は表面から最大侵入深さまでの平均となる。そのため特定の深さやミリメートル単位の深さの情報を得るには、RI 陽電子は適さない。そこで RI 等からの陽電子をタングステンなどの減速材中で熱化（エネルギーを減速）し再加速を行う陽電子の単色化は可能である。2000 年前後から世界中でこの方法での陽電子ビーム加速器が構築されてきているが、そのほとんどで最大加速が数 10keV 程度であり、金属や半導体などの固体では侵入深さは表面からせいぜい μm 程度である（図 3）。これでは陽電子が表面研究にのみ特化され、バルク材の非破壊検査への利用はできない。もちろんこの方法でメガ (10^6) eV まで加速することも可能であるが、比較的大掛かりな装置となるため、あまり実施されていない。

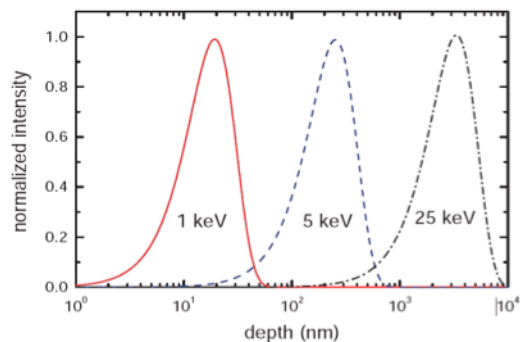


図 3 陽電子のエネルギーとシリコン中への陽電子侵入深さ

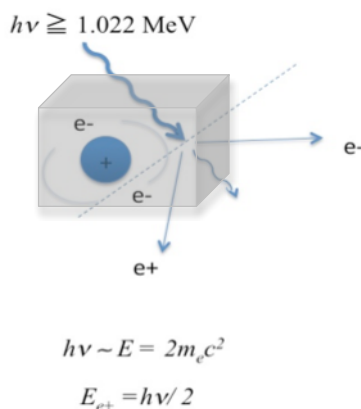


図 4 対生成のイメージ：物質に高エネルギーの光を充てると電子と陽電子が対になって生成

近年、放射光施設において放射光科学、物質創成、素粒子宇宙物理などの分野で陽電子・電子対生成が盛んに研究されているが、中でも放射光を利用したレーザーコンプトン(LCS) γ 線をによる陽電子・電子対生成がある。この方法では放射光施設のストレージリング内の高エネルギー電子 ($\sim\text{GeV}$) に特定の波長のレーザー光を当てる事で高エネルギー単色 γ 線を生成し、その γ 線から容易に高エネルギー陽電子を生成する事が可能である。兵庫県立大学高度産業科学技術研究所 (LASTI) の放射光施設ニュースバルでも、これまで陽電子の対生成と電子との分離に成功している[2,3]。我々のグループでは、この方法で生成した陽電子を高エネルギー陽電子ビームとして直接物性評価に適用することを試み、装置の構築とバルク体の金属材料内部の欠陥評価について検討をすすめている。

陽電子対生成

高エネルギー電子(e^-)にレーザー光を照射し、逆コンプトン散乱によって放出されたガンマ線 ($h\nu$)をターゲット照射することで、陽電子・電子対生成(e^+ , e^-)を起こし、陽電子が得られる。電子

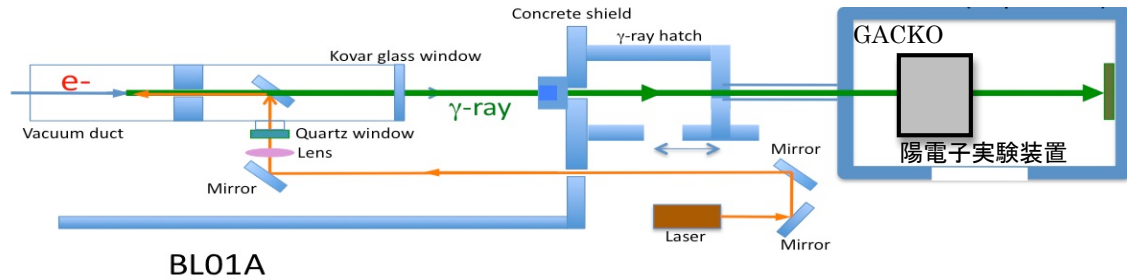


図 5 ニュースバル内でのレーザーと電子による LCS γ 線発生から陽電子生成-対消滅用実験室への導入ビームライン

と陽電子のエネルギーは反応時の相対論的效果を無視するとガンマ線のエネルギー $Eh\nu$ に依存し、それぞれ E_k のエネルギーを持つ。m は電子及び陽電子の静止質量、c は光速を表す。

$$Eh\nu \geq 2mc^2 = 1.022 \text{ MeV}$$

$$E_k = (Eh\nu - 2mc^2)/2$$

本実験では、ニュースバルの BL01A 高エネルギー γ 線ビームラインおよび GACKO ハッチ（甲南大学）内にて実験を行っている。LCS γ 線発生用の入射レーザーには波長 $1.064 \mu\text{m}$ の Nd を用い、1GeV 電子 (220mA) とレーザーから得られる LCS γ 線のエネルギーは 17.6 MeV であり、これを図 6 の様に鉛のターゲット（厚さ 3mm）に照射することで、鉛内で約 8MeV の陽電子と電子が生成する。生成した陽電子と電子は同時発生しているため、鉛を 0.2 T の磁場端に配置することにより磁場からそれぞれ反対向きのローレンツ力を受け左右に分離する。分離された陽電子と電子をイメージングプレートにて計測する。陽電子の最も到達量の多い部分に試料を配置することで、測定試料に陽電子を注入することができる。また、得られた陽電子のエネルギーが高いため、空気中での減衰は極めて少ない。そのため大気中での測定も可能である。本手法で用いた装置の写真を図 7 に示す。磁場で分離した陽電子は鉛ターゲットから約 15cm 離れた試料に大気中で直接入射する。今回測定した鉄試料では 8MeV の陽電子の侵入深さはおよそ 6 mm である[4]。

疲労試験片の陽電子測定

JIS 規格疲労試験片の形状に加工した厚さ 2mm の 4N の高純度鉄のバルク試料を 1073K で 30 分以上の熱処理により欠陥除去し、これを疲労試験に供した。疲労試験は SHIMADZU-EHF-F1 にて片振り試験によって破断までの応力負荷回数を

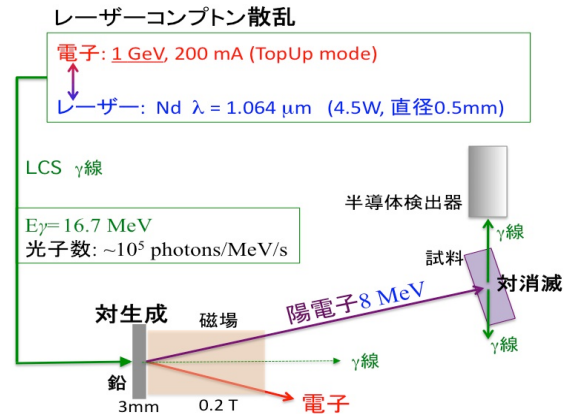


図 6 LCS γ 線生成から陽電子対生成、試料の陽電子測定までの全体の模式図

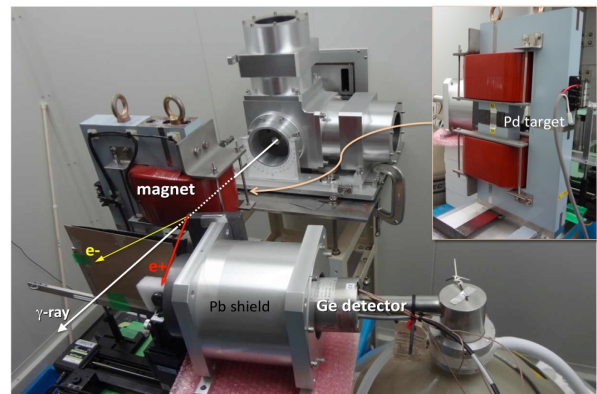


図 7 GACKO 内での陽電子対生成および試料の陽電子測定装置

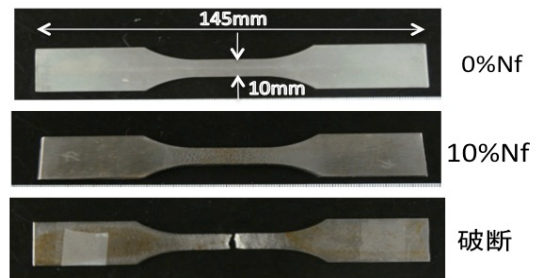


図 8 疲労サイクル負荷した鉄試験片

100%N_fとし、未疲労、10%N_f、100%N_fの試料を用いた。疲労試験条件は最大応力 450 N/mm²、繰返し回数 N_f= 2.3 x 10⁵であった。これらの試料のうち、未疲労試料、10%N_f試料、100%N_f試料について LCS_γ陽電子消滅ドップラー拡がり測定を室温で行った。8MeV 陽電子では侵入深さおよそ 5~6mm 程度まで到達するため、試料表面にタングステン板を配置することで侵入深さを調整した。

図 9 は各試料に LCS_γ陽電子を用いて測定したドップラー拡がりスペクトルを面積で規格化したものを示す。中心のピークが陽電子-電子静止質量に対応する 511keV で左右にエネルギーシフト α の分布を持っている。規格化してあるので、ピーク位置の値が大きいほど大きな空隙（数の情報も含む）を検出している。この図では未疲労が最も値が低く、10%N_f、100%N_fと疲労サイクルが増える毎に空隙が増大していることがわかる。このときの変化を一般的な内殻と外殻電子との消滅比として解析したドップラー S パラメータで見てみても、疲労サイクルの増加とともに空隙型の欠陥が導入されている事が確認できた。RI 線源法による陽電子消滅測定での変化と比較してみると[5]、図 10 のように同じ S 値は疲労により増加しているが、その割合は非常に小さい。この違いは観察している深さに起因していることから、疲労により導入されている空隙型の欠陥は表面に比べバルク内部により蓄積し大きいものが導入されていることがわかった。この結果は、表面を研磨しながら測定することで内部には大きなクラックが発生することを示した N.Maeda らの報告[6]や As を陽電子源とした深部での疲労実験の挙動[7]とも一致している。また、RI 線源での陽電子寿命測定から検出された導入欠陥は図 11 に示される様に 10%N_f程度での疲労では 200 ピコ秒を示す領域に最も欠陥が生成しており、これは転位に捕獲された非常に小さい Vn (n=2~3)の原子空孔型欠陥であり、この位置に最も応力集中が起こって最終的に破断する。RI 陽電子による同じ傾向の疲労挙動はステンレスなどでも確認されている [8]。今回高エネルギー陽電子を用いてバルク内部において疲労初期段階から比較的大きな空隙が蓄積し、これは表

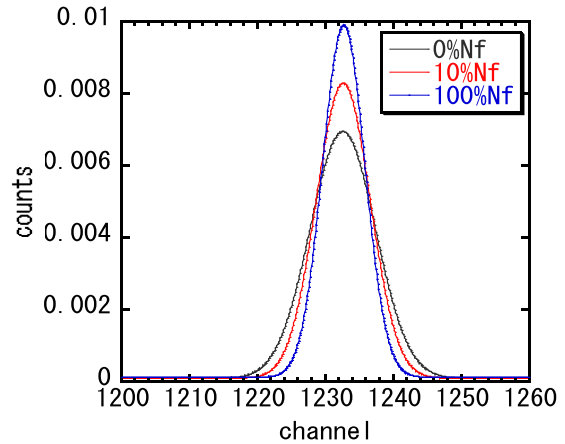


図 9 各疲労負荷後の鉄試料の陽電子消滅ドップラーспекトル

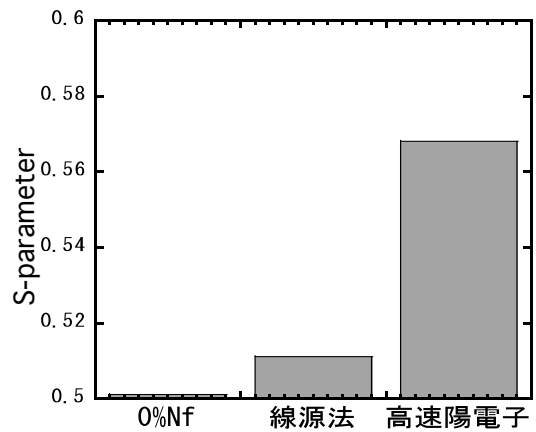


図 10 RI 線源と LCS_γ陽電子で測定した 10%N_f疲労での S 値の比較

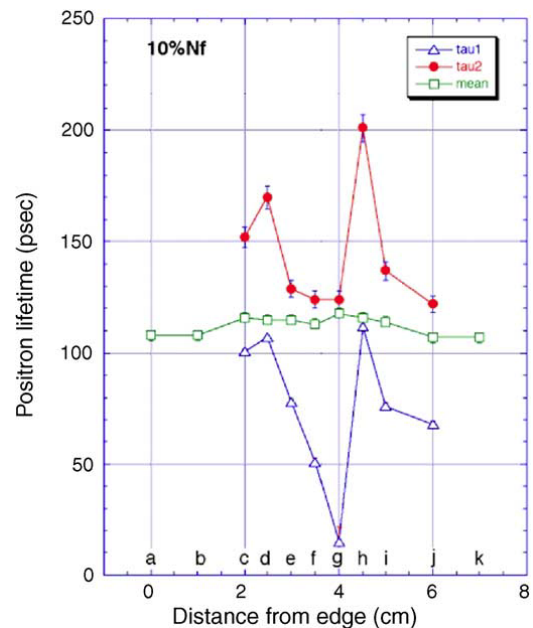


図 11 RI 線源陽電子で測定した 10%N_f疲労の陽電子寿命分布[5]

面近傍での疲労過程とは異なることを明らかにできた。

おわりに

以上のように、バルク内部の疲労過程を高速陽電子を用いて非破壊で検査する事によって、これまでは知り得なかった情報を得る事ができた。非破壊での物質内部の検査や研究への適用により、新しい情報や現象の発見や解明が可能である。陽電子消滅法は装置や解析の特殊性や、線源の確保などの問題からまだまだ一般性のある評価方法ではない。しかし、本手法のように共用施設などで必要な際にのみ簡便な装置で実験が可能になることで、研究レベルから産業利用などへの一般利用も今後期待している

参考文献

- [1] P.Hautojarvi and J.Yli-Kaupila, Nucl. Inst. and Meth. 199, (2009) pp.75-86.
- [2] D. Li et al, Appl. Phys. Let. 94, 091112, (2009).
- [3] H. Matsuoka et al, Proc. ICAPP'05, Seoul, Korea (2005) paper 5687
- [4] F. Hori, R. Oshima, phys. stat. solidi (a) 191 (2002) 409.
- [5] W.Brandt, Appl. Phys. 5, (1974) pp.1-23
- [6] N.Maeda, N.Nakamura, M.Uchida, Y.Ohta and K.Yoshida, Nucl. Eng. And Des. 167,(1996) pp.169-174
- [7] U. Holzwarth and P. Schaaff, Phys. Rev. B, 69 094110 (2004)
- [8] F. Hori, K.Koike and R. Oshima, Appl. Surf. Sci. 242, pp.304-312 (2005)